

特表平7-504173

第3部門第2区分

(43) 公表日 平成7年(1995)5月11日

(51) Int.Cl.* 識別記号 廈内整理番号
 C 0 7 D 405/12 2 3 9 7602-4C
 305/08 7252-4C
 405/12 2 5 1 7602-4C

51

審查請求 未請求 予備審查請求 有 (全 17 頁)

(21)出願番号 特願平5-514493
 (86) (22)出願日 平成5年(1993)2月9日
 (85)翻訳文提出日 平成6年(1994)8月15日
 (86)国際出願番号 PCT/EP93/00316
 (87)国際公開番号 WO93/17016
 (87)国際公開日 平成5年(1993)9月2日
 (31)優先権主張番号 5399/92-2
 (32)優先日 1992年2月21日
 (33)優先権主張国 スイス(CI)

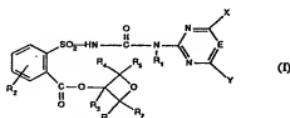
(71)出願人 チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト
スイス国, ツェーハー-4002 バーゼル,
クリッパックシュトラーセ 141
(72)発明者 ヤウ, ビート
スイス国, ツェーハー-4147 アエシュ,
ビルスヴェーケ 10
(72)発明者 クールマイエル, レイネル
ドイツ連邦共和国, デー-7817 イーリン
ゲン 2, ブルゲンデルシュトラーセ10
(74)代理人 エリザベス, 玄谷 (外1名)

最終頁に続く

(54) [発明の名称] 障蔽剤としてのスルホニル尿素

(57) **【要約】**

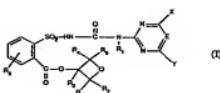
武昌



[式中、R₁は水素原子又はメチル基を表し；R₂は水素原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、溴素原子、(W)、-R₃、-NO₂、-N(R₄)R₅、-O—C≡CR₁または-CNを表し；R₃、R₄、R₅は

R_1, R_2, R_3 と R_4 は他と独立して水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を有し、 R_5 は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基、1、2、3 又は 4 個のハロゲン原子、炭素原子数 1 ないし 3 のアルキシ基又は炭素原子数 1 ないし 3 のアルキルチオ基により置換されている炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を有すか、または炭素原子数 2 ないし 4 のアルケニル基または 1、2、3 又は 4 個

4のアルキルチオ基、炭素原子数2ないし5のアルコキシリル基、炭素原子数2ないし5のアルコキシリル基、炭素原子数2ないし5のアルコキシリル基、炭素原子数2ないし5のアルコキシリル基、シクロプロピル基又は $-OCH_2$ を表し；Wは酸素原子、硫黄原子、SOまたは SO_2 を表し；そしてnは0又は1を表し；但し、a) 基 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 および R_5 の少なくとも一つは炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；b) Xがハロゲン原子を表す場合は、Eは $-CH_2$ を表し；そしてc) XまたはYが $-OCH_2$ または $-SCH_2$ を表す場合は、Eは $-CH_2$ を表す。]のN-フェニルスルホニル-N'-ビリミジニル-およびN'-トリアジニル-尿素は、優れた発芽前または発芽後選択的除草と成長調節作用の特性を持つ。



(式中、 R_1 は水素原子又はメチル基を表し；

R_2 は水素原子、フッ素原子、塩素原子、溴素原子、炭素原子、(W)、- R_3 、- NO_2 、 $-N(R_4)R_5$ 、 $-O-\frac{R_6}{R_7}-C=CR_8$ または $-CNR_9$ を表し；

R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 と R_7 は他と独立して水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

R_8 は炭素原子数1ないし4のアルキル基、1、2、3又は4個のハロゲン原子、炭素原子数1ないし3のアルコキシリ基又は炭素原子数1ないし3のアルキルチオ基により置換されている炭素原子数1ないし4のアルキル基を表すか、または炭素原子数2ないし4のアルケニル基または1、2、3又は4個のハロゲン原子により置換されている炭素原子数2ないし4のアルケニル基を表し；

R_9 は水素原子、メトキシ基、エトキシ基または炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

R_1 は水素原子または炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

R_2 は水素原子、メチル基またはエチル基を表し；

R_3 は水素原子またはメチル基を表し；

Eは $-CH_2$ または $-N$ を表し；

Xは炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシリ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシリ基、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基、炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数2ないし5のアルコキシリアルキル基、炭素原子数2ないし5のアルコキシリアルコキシリ基、アミノ基、炭素原子数1ないし3のアルキルアミノ基またはW(炭素原子数1ないし3のアルキル)アミノ基を表し；

Yは炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシリ基、炭素原子数1ないし4のハロアルコキシリ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキルチオ基、炭素原子数2ないし5のアルコキシリアルキル基、炭素原子数2ないし5のアルコキシリアルコキシリ基、炭素原子数2ないし5のアルキルチオアルキル基、シクロプロピル基又は $-OCH_2$ を表し；

Wは硫黄原子、炭素原子、SOまたは SO_2 を表し；そして

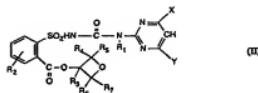
nは0又は1を表し；

但し、a) 基 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 および R_5 の少なくとも一つは炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

b) Xがハロゲン原子を表す場合は、Eは $-CH_2$ を表し；そして

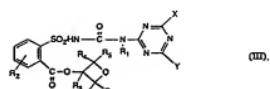
c) XまたはYが $-OCH_2$ または $-SCH_2$ を表す場合は、Eは $-CH_2$ を表す。]の化合物およびその塩。

2. 式 II:



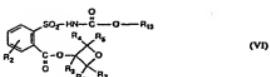
(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 、 X および Y は請求項1中と同じに定義される。)の請求項1記載の化合物。

3. 式 III:



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅およびR₆は請求項1中と同じに定義される。)のフェニルスルホニルクロライド。

12. 式VI:



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅およびR₆は請求項1中と同じに定義され、そしてR₁はフェニル基または炭素原子数1ないし4のアルキル基またはハロゲン原子により置換されているフェニル基を表す。)のスルホニルカルバーメート。

13. 請求項1記載の式1の一種またはそれより多いスルホニル尿素からなる除草および植物成長抑制組成物。

14. 0. 1%ないし0.5%の請求項1記載の式1の有効成分からなる請求項1-3記載の組成物。

15. 望ましくない植物の生育を抑制する方法であつて:

請求項1記載の式1の有効成分またはこの有効成分からなる組成物の有効量を、植物またはその環境に適用することからなる方法。

16. ヘクタール当たり0. 001と2kgの間の量の

ジフェニルカルボン酸誘導体およびスルファモイルフェニル尿素誘導体類から選択された葉害誘導剤の除草剤一指徴的に有効な量で、同時にまたは互いに独立して、作物、それらの種子または栽培領域を処理することからなる方法。

22. 作物植物の茎または作物植物の栽培領域を、請求項1記載の式1の除草剤または式中、R₁、R₂、R₃、R₄およびR₅が同時に水素原子を表す式1の除草剤の0. 001ないし2kg/ヘクタールで、

キノリン-8-オキシ誘導体、ジフェニルカルボン酸誘導体およびスルファモイルフェニル尿素誘導体類から選択された葉害誘導剤の0. 005ないし0. 5kg/ヘクタールの量で、処理することからなる請求項1-21記載の方法。

有効成分が適用される請求項1-5記載の方法。

17. 植物の生育を阻止する方法であつて:

請求項1記載の式1の有効成分またはこの有効成分からなる組成物の有効量を、植物またはその環境に適用することからなる方法。

18. 有用植物の作物中の雑草の発芽前または発芽後の選択的抑制のための請求項1-5記載の方法。

19. 有用植物の作物中の雑草の発芽前または発芽後の選択的抑制のために、請求項1-3記載の組成物を使用する方法。

20. 不活性担体と添加物の性に、

a) 請求項1記載の式1の化合物のまたは式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅およびR₆が同時に水素原子を表す式1の化合物の除草的に有効な量、および

b) 有効成分として、キノリン-8-オキシ誘導体、ジフェニルカルボン酸誘導体およびスルファモイルフェニル尿素誘導体類から選択された葉害誘導剤の除草剤一指徴的に有効な量

からなる混合物を含む、有用植物の作物中の雑草の発芽前または発芽後の選択的抑制のための組成物。

21. 有用植物の作物中の雑草(細葉と広葉雑草)の選択性抑制のための方法であつて:

請求項1記載の式1の除草剤または式中、R₁、R₂、R₃、R₄およびR₅が同時に水素原子を表す式1の除草剤の有効量、及びキノリン-8-オキシ誘導体、

明細書

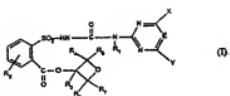
除草剤としてのスルホニル尿素

本発明は新規な、除草作用のあるおよび植物の成長を調節するN-フェニルスルホニル-N' -ビリミジニル-およびトリアジニル-尿素、それらの製造方法、有効成分としてそれらを含む組成物、および雑草を防除する、特に、有益な植物である作物において雑草を選択的に防除するかまたは植物の成長を調節および抑制するためのこれらの組成物の使用方法に関する。

除草作用を持つ尿素化合物、トリアジン化合物およびビリミジン化合物は一般に公知である。そのような化合物は、例えば欧州特許出願第0 007 687号、0 030 138号、0 030 136号、0 073 562号および0 126 711号に記載されている。

除草作用と植物成長調節作用を持つ新規のスルホニル尿素を今や見出した。

本発明のN-フェニルスルホニル-N' -ビリミジニル-およびN' -トリアジニル-尿素は下記の式1:



(式中、R₁ は水素原子又はメチル基を表し；

R₂ は水素原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、
炭素原子、(W)、-R₃、-NO₂、
-N(R₄)R₅、-O—C≡CR₆または-C≡CN
を表し；

R₇、R₈、R₉、R₁₀とR₁₁は他と独立して水素原子
又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

R₁₂ は炭素原子数1ないし4のアルキル基、1、2、
3又は4個のハロゲン原子、炭素原子数1ないし3のアルキ
シ基又は炭素原子数1ないし3のアルキルチオ基
により置換されている炭素原子数1ないし4のアルキ
ル基を表すか、または炭素原子数2ないし4のアルケニル
基または1、2、3又は4個のハロゲン原子により置換
されている炭素原子数2ないし4のアルケニル基を表し；

R₁₃ は水素原子、メトキシ基、エトキシ基または炭素
原子数1ないし4のアルキル基を表し；

R₁₄ は水素原子または炭素原子数1ないし4のアルキ
ル基を表し；

R₁₅ は水素原子、メチル基またはエチル基を表し；

b) Xがハロゲン原子である場合はEは-CH=を表
し；そして

c) XまたはYが-OCH₃、または-SCH₃を表
す場合は、Eは-CH=を表す。) で表されるそれら
と、これら化合物の塩である。

ハロゲン原子としてのXの適当なものは、フッ素原子、
塩素原子、臭素原子または炭素原子、好ましくはフッ素
原子、塩素原子および臭素原子である。

炭素原子数1ないし4のアルキル基としてのR₁、
R₂、R₃、R₄、R₅、R₆、R₇、R₈、Xおよび
Yの適当なものは、メチル基、エチル基、n-ブロピル
基、イソブロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、
イソブチル基又はtert-ブチル基である。炭素原子
数1ないし3のアルキル基が好ましい。

1ないし4個のハロゲン原子により置換されている
炭素原子数1ないし4のアルキル基としてのR₁の適当な
ものは、特に、フッ素原子、塩素原子、臭素原子または
炭素原子により置換されているアルキル基である。これ
らのハロゲン置換されている炭素原子数1ないし4のアル
キル基の中で好ましいものは、ハロゲン原子、特にフ
ッ素原子または塩素原子により置換されているアルキ
ル基、例えばフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、ト
リフルオロメチル基、クロロメチル基、ジクロロメチ
ル基、トリクロロメチル基、クロロメチル基、ジクロ
ロメチル基、トリクロロメチル基、2, 2, 2-トリフル
オロエチル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチ
ル基および2, 2, 2-トリクロロエチル基；好ましく
はジフルオロメチル基およびトリフルオロメチル基であ
る。

炭素原子数1ないし4のアルキシ基としてのXおよ
びYの適当なものは、例えば、メトキシ基、エトキシ基、
ブロピルオキシ基、イソブロピルオキシ基、n-ブチ
ルオキシ基、イソブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ

R₁₂は水素原子またはメチル基を表し；

Eは-CH=または-N=を表し；

Xは炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数
1ないし4のアルキシ基、炭素原子数1ないし4のハ
ロアルキル基、炭素原子数1ないし4のハロアルキ
シ基、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基、炭素
原子数1ないし4のアルキルチオ基、ハログン原子、炭
素原子数2ないし5のアルキシアルキル基、炭素原子
数2ないし5のアルコキシアルコキシ基、アミノ基、炭
素原子数1ないし3のアルキルアミノ基またはジ(炭素
原子数1ないし3のアルキル)アミノ基を表し；

Yは炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数
1ないし4のアルキシ基、炭素原子数1ないし4のハ
ロアルキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキ
ルチオ基、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基、炭
素原子数2ないし5のアルキシアルキル基、炭素原子数
2ないし5のアルコキシアルコキシ基、炭素原子数2な
いし5のアルキルチオアルキル基、シクロプロピル基又
は-OCH₃を表し；

Wは炭素原子、硫黄原子、SOまたはSO₂を表し；
そして

nは0又は1を表し；

但し、a) 基R₁、R₂、R₃、R₄およびR₅の少
なくとも一つは炭素原子数1ないし4のアルキル基を表
し；

チル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチル基お
よび2, 2, 2-トリクロロエチル基；好ましくはジフ
ルオロメチル基およびトリフルオロメチル基である。

炭素原子数1ないし3のアルキルチオ基により置換さ
れている炭素原子数1ないし4のアルキル基としての
R₁の適当なものは、例えば：メチルチオエチル基、エ
チルチオエチル基、ブロピルチオエチル基、イソブロ
ピルチオメチル基、好ましくはメチルチオメチル基とエチ
ルチオエチル基である。

炭素原子数1ないし4のハロアルキル基としてのXの
適当なものは、特に、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、
炭素原子またはエチル基により置換されているアルキ
ル基である。これらの基の中で好ましいものは、ハロゲン原子、特に
フッ素原子又は塩素原子により單ないし三置換されたア
ルキル基、例えばフルオロメチル基、ジフルオロメチ
ル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ジクロ
ロメチル基、トリクロロメチル基、2, 2, 2-トリフル
オロエチル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチ
ル基および2, 2, 2-トリクロロエチル基；好ましく
はジフルオロメチル基およびトリフルオロメチル基であ
る。

炭素原子数1ないし4のアルキシ基としてのXおよ
びYの適当なものは、例えば、メトキシ基、エトキシ基、
ブロピルオキシ基、イソブロピルオキシ基、n-ブチ
ルオキシ基、イソブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ

基およびtert-ブチルオキシ基；好ましくはメトキシ基とエトキシ基である。

炭素原子数1ないし4のハロアルコキシ基としてのXおよびYの適当なものは、例えば、ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエトキシ基、2-フルオロエトキシ基、2-クロロエトキシ基および2, 2-ジフルオロエトキシ基；好ましくはジフルオロメトキシ基およびトリフルオロメトキシ基である。

炭素原子数2ないし5のアルコキシアルキル基としてのXおよびYのための適当なものはおよび(炭素原子数1ないし3のアルコキシ) (炭素原子数1ないし4のアルキル) 基としてのR₁のための適当なものは、例えばメトキシメチル基、メトキシエチル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基またはプロピルオキシメチル基である。

炭素原子数2ないし4のアルケニル基としてのR₂の適当なものは、直鎖または分枝したアルケニル基、例えばビニル基、アリル基、メタクリル基、1-メチルアリル基または2-ブテン-1-イル基であって、2ないし3の炭素原子数を持つアルケニル基が特に適当である。

1ないし4個のハロゲン原子により置換されている炭素原子数2ないし4のアルケニル基としてのR₃の適当なものは、例えば、3, 3-ジフルオロブタン-2-エン-1-イル基である。

炭素原子数1ないし4のアルキルオキシ基としてのXおよ

びYの適当なものは、例えば、メチルオキシ基、エチルオキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、n-ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、sec-エーブチルオキシ基またはtert-ブチルオキシ基、好ましくはメチルオキシ基またはエチルオキシ基である。

炭素原子数1ないし4のハロアルキルオキシ基としてのXおよびYの適当なものは、特に、フッ素原子、塩素原子、臭素原子または溴素原子により置換されているアルキルオキシ基である。これらの基の中で好ましいものは、ハロゲン原子、特にフッ素原子または塩素原子により単ないし三置換されているアルキルオキシ基、例えばフルオロメチルオキシ基、ジフルオロメチルオキシ基、トリフルオロメチルオキシ基、クロロメチルオキシ基、ジクロロメチルオキシ基またはトリクロロメチルオキシ基である。

炭素原子数2ないし5のアルキルオキソアルキル基としてのYの適当なものは、例えば、メチルオキソエチル基、エチルオキソエチル基、プロピルオキソエチル基またはイソプロピルオキソメチル基、好ましくはメチルオキソメチル基とエチルオキソエチル基である。

炭素原子数2ないし5のアルコキシアルコキシ基としてのXおよびYの適当なものは、例えば、メトキシメトキシ基、メトキシエトキシ基、メトキシプロピルオキシ基、エトキシメトキシ基、エトキシエトキシ基およびプロピルオキシメトキシ基である。

炭素原子数1ないし3のアルキルアミノ基としてのX

の適当なものは、例えば、メチルアミノ基、エチルアミノ基、n-ブロピルアミノまたはイソブロピルアミノ基である。基XとしてののY (炭素原子数1ないし3のアルキル) アミノ基は、例えば、メチルアミノ基、メチルエチルアミノ基、ジエチルアミノ基またはn-ブロピルメチルアミノ基である。

本発明はまたアミン、アルカリ金属塩基およびアルカリ土類金属塩基もしくは第四級アンモニウム塩基と形成可能な式Iで表される化合物の塩も含む。

塩形成物質としての好ましい金属水酸化物もしくはアルカリ土類金属水酸化物は、リチウム水酸化物、ナトリウム水酸化物、カリウム水酸化物、マグネシウム水酸化物およびカルシウム水酸化物、特にナトリウム水酸化物またはカリウム水酸化物である。

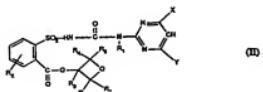
塩形成に適当なアミンの例は、第一、第二および第三の脂肪族および芳香族アミン、例えば、メチルアミン、エチルアミン、プロピルアミン、イソプロピルアミン、4個のブチルアミン異性体、ヨアミルアミン、イソアミルアミン、ヘキシルアミン、ヘプチルアミン、オクチルアミン、ノリルアミン、デシルアミン、ベンタデシルアミン、ヘキサデシルアミン、ヘプタデシルアミン、オクタデシルアミン、メチルエチルアミン、メチルイソブロピルアミン、メチルヘキシルアミン、メチルノリルアミン、メチルベンタデシルアミン、メチルオクタデシル

アミン、エチルブチルアミン、エチルヘプチルアミン、エチルオクチルアミン、ヘキシルヘプチルアミン、ヘキシルオクチルアミン、ジメチルアミン、ジエチルアミン、ジ-n-ブロピルアミン、ジ-n-ブチルアミン、ジ-n-アミルアミン、ジ-イソソアミルアミン、ジヘキシルアミン、ジヘプチルアミン、ジオクチルアミン、エタノールアミン、n-ブロボノールアミン、イソブロボノールアミン、N、N-ジエチルエタノールアミン、N-エチルプロボノールアミン、N-エチルプロボノールアミン、N-ブチルエタノールアミン、アリルアミン、n-ブチニル-2-アミン、n-ベニチニル-2-アミン、2, 2-ジメチルブチニル-2-アミン、ジブチニル-2-アミン、n-ヘキセニル-2-アミン、プロピレンジアミン、ジエタノールアミン、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリ-n-ブロピルアミン、トリイソブロピルアミン、トリ-n-ブチルアミン、トリイソブチルアミン、トリ-sec-エーブチルアミン、トリ-エーミルアミン；複素環アミン、例えばビリジン、キノリジン、イソキノリジン、モルホリン、ビペリジン、ビロリジン、インドリン、キヌクリジンおよびアゼビン；第1級アリールアミン、例えばアニリン、メトキシアニリン、エトキシアニリン、o-、m-またはp-トルイジン、フェニレンジアミン、ベンジン、ナフチルアミンおよびo-、m-またはp-クロロアニリンであるが、特に、エチル-、プロピル-、ジエチル-またはトリエチルア

ミン、熱し、特にイソプロピルアミンとジエタノールアミンである。

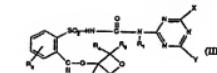
四级アンモニウム塩基の例は一般に、ハロアンモニウム塩のカチオン、例えば、テトラメチルアンモニウムカチオン、トリメチルベンジルアンモニウムカチオン、トリエチルベンジルアンモニウムカチオン、テトラエチルアンモニウムカチオン、トリメチルエチルアンモニウムカチオンであり、またアンモニウムカチオンでもある。

式III:



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆、R₇、R₈およびYは式I中と同じに定義される。)の化合物は好ましい。

他の好ましい化合物は、式III:



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆、R₇、R₈およびYは式I中と同じに定義される。)の化合物である。

特に好ましい化合物は、式I、IIおよびIII中、R₁が水素原子である化合物である。

式I、IIおよびIIIの他の特に好ましい化合物は、式中、R₁が水素原子である化合物である。

式I、IIおよびIIIの特に好ましい化合物は、式中、R₁、R₂とR₃が水素原子である化合物である。

式I、IIおよびIIIの特に重要な化合物は、式中、R₁が水素原子を表すそれら、特に、式中、R₁とR₂、R₃とR₄、R₅とR₆またはR₁、R₂、R₃、R₄およびR₅が水素原子を表すそれらである。

式Iの他の興味のある化合物は、式中、R₁とR₂が水素原子を表し、R₃、R₄、R₅、R₆およびR₇が互いに独立して水素原子またはメチル基を表し、Eが-CH=または-N=を表し、Xがメチル基、メトキシ基、メチルアミノ基、ジメチ

ルアミノ基、ジフルオロメトキシ基または堿素原子を表しそしてYがメチル基、メトキシ基、ジフルオロメトキシ基、エトキシ基またはシクロプロピル基を表し、

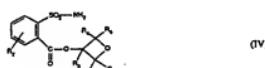
但し、a) R₁、R₂、R₃、R₄およびR₅の少なくとも一つがメチル基を表し、

b) Eが、Xが堿素原子である場合、-CH=を表すとして

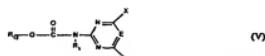
c) Eが、XまたはYが-OCH₃を表す場合、-CH=を表すそれらである。

式Iの化合物は、

a) 式IV:



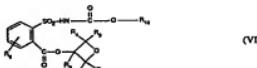
(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅およびR₆は式I中と同じに定義される。)のフェニルスルホンアミドを、式V:



(式中、R₁、E、XおよびYは式I中と同じに定義さ

れ、そしてR₁はフェニル基または堿素原子数1ないし4のアルキル基またはハロゲン原子により置換されているフェニル基を表す。)のビリミジニルカーバメートまたはトリアジニルカーバメートと、塩基の存在下、反応させることにより、または

b) 式VI:

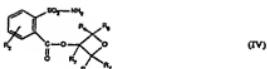


(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅およびR₆は式I中と同じに定義されそしてR₁は式V中と同じに定義される。)のスルホニルカーバメートを、式VII:



(式中、R₁、E、XおよびYは式I中と同じに定義される。)のアミンと、塩基の存在下、反応させることにより、または

c) 式IV:

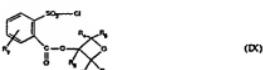


(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅ および R₆ は式 I 中と同じに定義される。) のフェニルスルホンアミドを、式 VIII:



(式中、B、X および Y は式 I 中と同じに定義される。) のビリミジンルソシアナートまたはトリアジニルソシアナートと、塩基の存在下、反応させることによるいずれかの方法で製造できる。

式 I の化合物は、式 IX:



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅ および R₆ は式 I 中と同じに定義される。) の化合物を、式 VIII の化合物

一般に、反応は少し発熱しながら進行し、室温で行われてよい。反応時間は短くするため、または反応を開始するため、反応混合物を短時間内に沸点まで加熱する方が都合が良い。反応触媒として数種の塩基を添加することによって反応時間は短くすることも可能である。適当な塩基は特に、第三級アミン、例えば、トリメチルアミン、トリエチルアミン、キラクライジン、I、4-ジアゼビシクロ [2.2.2]オクタン、I、5-ケニアザビシクロ [4.3.0]-5-ノネンまたはI、5-ジアゼビシクロ [5.4.0]-7-ウニンセダンである。

別法として、無機塩基、例えば、水素化物、例えば、水素化ナトリウムまたは水素化カリウム；水酸化物、例えば、水酸化ナトリウムおよび水酸化カリウム；炭酸塩、例えば、炭酸ナトリウムおよび炭酸カリウム、または炭酸水素物、例えば、炭酸水素カリウムおよび炭酸水素ナトリウムもまた、塩基として使用される。

式 I の最終生成物は、蒸発および/または溶媒の蒸発によって単離され、そして容易に溶解しない溶媒、例えば、エーテル、芳香族炭水素または塩素化炭水素の中の固体残渣の再結晶または重蒸によって精製され得る。

式 I の化合物の上記の製造法では、R₁ は、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基または炭素原子により置換されているフェニル基、特に好ましくはフェニル基である。

物と、式 X:



(式中、M はアルカリ金属または R₁、R₂、R₃、R₄、R₅ および R₆ は式 I 中と同じに定義される。) は互いに独立して炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基、ベンジル基またはフェニル基を表し、炭素原子の総数は 3-6 より大きくなく；そして Q は窒素原子、硫黄原子またはリン原子を表す。) を表す。) のシアン酸塩のアミノニウム、ホスホニウム、スルホニウムまたはアルカリ金属塩の存在下、反応させることによっても製造できる。そのような反応はスイス特許明細書第 662348 号に記載されている。

式 I の化合物を形成する反応は、非プロトン性の不活性有機溶媒中で有利に行われる。そのような溶媒は炭化水素、例えば、ベンゼン、トルエン、キシンまたはシクロヘキサン；塩素化炭化水素、例えば、ジクロロメタン、トリクロロメタン、テトラクロロメタンまたはクロロベンゼン；エーテル類、例えば、エチルエーテル、エチレンギリコールメチルエーテル、エチレンギリコールジメチルエーテル、テトラヒドロフランまたはジオキサン；ニトリル、例えば、アセトニトリルまたはブロピオニトリル；およびアミド、例えば、ジメチルホルムアミド、エチルホルムアミドまたは N-メチルピロリドンである。反応温度は好ましくは -20°C と +120°C の間である。

式 IV のフェニルスルホンアミドは、式 I の有効成分の製造のために特に開発されそして製造された新規の化合物である。従って、それらは本発明のための一部分である。式 I の化合物の場合に上述した、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅ および R₆ についてと同じ好ましい範囲が、式 IV の化合物に適用される。それらは式 IX:



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅ および R₆ は式 I 中と同じに定義される。) の該当するフェニルスルホニルクロライドから、アンモニアによる反応により得られる。そのような反応は当業者にとって周知である。

式 IX のフェニルスルホニルクロライドは、式 I の有効成分の製造のために特に開発されそして製造された新規の化合物である。従って、それらは本発明のための一部分である。式 I の化合物の場合に上述した、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅ および R₆ についてと同じ好ましい範囲が、式 IX の中間体に適用される。式 IX のフェニルスルホニルクロライドは、適当に変換されている 2-クロロスルホニルベンゾイルクロライド (参照: 例えは



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅とR₆は式 I 中と同じに定義される。) の化合物と、塩基の存在下、反応させることにより製造される。そのような反応は当業者に周知である。

式 IX のフェニルスルホニルクロライドも、2-イソブロピルチオ安息香酸 (参照、例えば H. Glass, F. J. Webb, Am. Soc. 71, 4082-4083) を塩基化チオニルと反応させて該当するベンゾイルクロライドを得、次いでそれを、塩基の存在下、式 (XII) の化合物と共に該当する 2-イソブロピルチオ安息香酸オキセチン-3-イルに変換し、そこで塩素と反応させて最後に式 IX のスルホニルクロライドを得る。そのような反応は当業者に周知である。

式 XI の化合物とその製造法は既知である (参照、例えば J. Am. Chem. Soc. 112, 3535-3539 (1990); Bull. Chem. Soc. Japan 62, 2032 (1989); Acta Chem. Scand. 28, 701 (1974); Tetrahedron Letters 20, 2505-2508 (1969); J. Am. Chem. Soc. 77, 4430 (1955)).

特表平7-504173 (9)

式 VI のスルホニルカーパメートは新規でありそして本発明の部分である。式 I の化合物の場合に上述した、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅ および R₆ についてと同じ好ましい範囲が、式 VI の中間体に適用される。それらは、例えば、式 IV のスルホンアミドをジフェニルカーパメートと塩基の存在下反応させることにより得られる。そのような反応は当業者には既知である。

式 VII のアミンは、欧洲特許出願第 0 0 0 7 6 8 7 号、0 0 3 0 1 3 8 号、0 0 7 3 5 6 2 号および 0 1 2 6 7 1 1 号および米国特許第 4 5 7 9 5 8 4 号に記載されている。

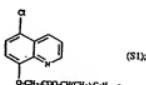
N-ビリミジニル-および N-トリアジニルカーパメートは、例えば欧洲特許公開公報 (EP-A-1) 第 0 1 0 1 6 7 0 号に記載されている。

一般に、式 I の有効成分は、0.001 ないし 2 kg / ha、特に 0.005 ないし 1 kg / ha の薬用量で好結果に使用される。所望の作用のために必要とされる薬用量は試験によって決定できる。それは作用の型、作物種および種草 (参考、時期、方法) に依存し、これらのバラーメータのため、それは広い範囲内で変化し得る。

この組成物の使用、または除草剤と除害剤の組み合せに関する。

本発明の組成物で使用される農薬殺虫剤は、例えば欧洲特許公開公報 (EP-A-1) 第 0 4 9 2 3 6 6 号および欧洲特許公開公報 (EP-A-1) 第 0 0 9 4 3 4 9 号に記載されるとおりのキノリン-8-オキシ酰胺類、例えば欧洲特許公開公報 (EP-A-1) 第 0 2 6 6 5 5 4 号に記載されるとおりのジフェニルカルボン酰胺類、および例えば欧洲特許公開公報 (EP-A-1) 第 0 3 8 5 4 8 4 号に記載されるとおりのスルファモイルフェニル尿素酰胺類に属する。

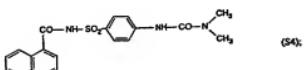
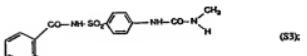
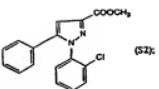
式 S 1 ないし S 5 の高官能基剤は本発明の組成物に使用するのに特に適している:



式 I の化合物は有用植物である作物、特に牧草類、棉花、大豆、甜菜根種子-セイヨウアブラナ、トウモロコシおよびイネにおける使用に対し顯著に適当であることを示す成長抑制および除草特性によって特徴付けられ、ダイズ作物中の雜草が発芽後処理で鮮明に抑制される。式 I の化合物はそれらの高い分解性により特徴付けられる。

驚くべきことに、式 I の化合物そして更には式中、R₁、R₂、R₃、R₄ および R₅ が同時に水素原子である式 I の化合物が、或る特定の害虫殺虫剤に対して効果があることが判明した。これらの害虫殺虫剤または除害剤は、除草剤により殺される雑草に対して作物植物を保護することができる (例えば、葉面ないし過剰葉量の場合)。更には、これらの除害剤は、植物との関連で、除草用抵抗性の植物に統いてその除草剤に対して抵抗性がないまたは不十分な抵抗性だけしか持たない作物植物を育成する場合の作物植物を害虫から保護することができる。従って、本発明は有用植物中の雜草 (雜草と広葉雜草) を抑制するための過剰的除草剤組成物であって、式 I の除草剤または式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅ および R₆ が同時に水素原子である式 I の除草剤、及びその除草剤の種子毒性に対して作物を保護するが、雜草を保護しない高官能基剤 (活性剤、除害剤) からなる除草剤組成物、並びに有用植物の作物中の除草のため

表平7-504173 (10)



式 S1、S2、S3、S4 および S5 の葉面活性剤からなる特に好ましい組成物は、使用される式 I の除草剤が式 2, 0, 1, 1 の化合物であるそれらである：

草図する使用によって、害虫駆除剤または解毒剤は、作物植物の種子を育成するにために（種子被覆または切枝の処理）使用されまたは播種の前または後で土壌中に撒く。

剤法としては、それは純粋な有効成分としてまたは種子の発芽の前または後に除草剤と共に適用できる。従って、植物または種子は、植物毒性化学品の適用時点とは無関係に実質的に直接して薬害緩和剤で處理できる。剤法としては、植物は植物毒性化学品と薬害緩和剤の同時適用（タシク混合）により處理され得る。発芽前処理とは、種子の育成作業の基礎および種子は播種されたが植物はまだ発芽していない状態での処理を允する。

通用される藻蓄養剤の除草剤に対する適用量は、通用方法に大きく依存する。一般には、藻蓄養剤と除草剤の組み合わせのタンク混合物を使用するか、または藻蓄養剤と除草剤の別々の適用によるいずれかによって実施される場合は、1:100ないし1:1、および1:20ないし1:2の割合で、特に1:1のタンク混合剤を用いる。

する薬害緩和剤の比率を要求する。これと対照的に種子被覆は耕作区域のヘクタール当りの除草剤の適用量に比例してかなりより少ない量の薬害緩和剤を要求する。

は塗処理の場合は、概して、0.001ないし5.0 kg/haの殺害経減剤、好みしくは0.005ないし0.5 kg/haの殺害経減剤が適用される。

除草剤の施用量は、概して0.001と2kg/haの間、好ましくは0.001と0.5kg/haの間である。

概して、蒸煮殺菌剤 0.001ないし 1.0 g/（被子 kg）、好ましくは蒸煮殺菌剤 0.6ないし 2 g/（被子 kg）が被子殺菌の場合は、適用される。蒸煮殺菌剤を被覆の短時間前の被子浸漬のための剤形の形で適用する場合は、有效成分を 1ないし 0.0000 ppm、好ましくは 1.0ないし 1.0000 ppm の濃度で含有する蒸煮殺菌剤の剤形を用いるのが好都合である。

適用の目的のためには、系索延緩剤、又は拮抗される除草剤と共に本説明に従って使用される系索延緩剤の組み合わせを、製剤技術で常用されている補助剤と共に使用するのが好都合であり、それら補助剤は既に式1の化合物の構造に開示してお記述してある。

本発明は、式1の新規の有効成分からなる除草剤と植物成長調節剤のための製剤、植物成長抑制剤の方法に関する。植物成長調節剤は、農業経営的に所望する、植物中のまたは植物に与える生化学的として生理学的および/または農業経営的の効用を有する。

本発明の組成物中に含有される有効成分は、選用時期、施用量、選用形式と支配現象によるいろいろの方法で、植物成長に影響する。例えば、式¹の植物成長調節剤は植物の徒長を抑制できる。この型の作用は、芝生、耐候性植物の栽培地、果樹園地、高傍地、運動場と工業区域に適用する場合に、そしてそれだけではなく例えばタバコ栽培におけるような2次発芽の特定期節でも、有用である。耕作農業では、基強化による収穫の従来耕作は倒伏を減少し、同様の収穫經營効果は、耐耕性セイヨウアピアナ、ヒマワリ、トウモロコシおよび他の作物種でも実現される。更に、徒長防止は單位面積当たりの植株數を増加できることを意味する。成長抑制剤を適用できる他の分野は、農園または畝園の空間の広い作物での被植物の選択的抑制であり、被植物をそれを植らすことなく強力に成長抑制することにより行い、そのため、主作物との競争はなくなるが、浸食防止、土壤固定化および土壤流失のような農業経営的に役立つ効果が期待される。

植物成長を抑制する方法は、突然変異の変種で、植物の遺伝学的な特性によって決定されるような植物のライフルサイクルを変えることなく個体の自然の発育を管理する方法を意味するものと理解されるべきである。植物調節の方法は、個々の場合で決定される植物の発育時期の個々の時点で使用される。式1の有効成分は植物の芽葉の萌芽または後、例えば、胚には葉または花木、根、茎、葉の

茎、葉、花または他の植物部分に適用されうる。これは例えば、有効成分を、純粋な有効成分としてまたは組成物の形態として植物に適用することによって、および/または植物の栄養培地（土壌）を処理することにより行うことができる。

種々の方法および技術は、植物成長を調節するため式Iの化合物または式Iの化合物を含む組成物を使用するのに適する。例えば、以下の通りである：

1) 種子被覆

a) 種子表面を均一に覆うまで、容器中に設けられた有効成分で種子を被覆する（乾式被覆）。種子1kgにつき式Iの有効成分を4gまでをこの方法において使用する（50%製剤の場合、水和剤8.0gまで）。

b) 式Iの有効成分の乳剤液版で、または水和剤として調合された式Iの有効成分の水性液版でa)法を使用して種子をドレッシングする（湿式被覆）。

c) 1000ppmまでの式Iの有効成分を含む液版で1)ないし2)時間、種子を浸し、必要ならば、続いて種子を乾燥させることにより種子を被覆する（種子浸抜法）。

当然、有効成分での処理が目的の作物に完全に向けるため、種子のドレッシングまたは発芽した苗木の処理

は本質的に好ましい施用方法である。既して、有効成分の0.001gないし4.0gは一般に1kgの種子につき使用されるが、選択された方法に依存して両方の適度散布界は与れることは可能であり、その選択された方法は他の有効成分または微量元素の添加もまた可能にする（反復被覆）。

2) 有効成分の放出剤

溶解した有効成分を、乾物粒状固体または混合粒子（尿素／ホルムアルデヒド）に適用し、乾燥させる。必要なならば、有効成分を特定期間かけて放出できる被覆を適用できる（被覆剤）。

式Iの化合物は合成によって得られるそのままの形態で、あるいは好ましくは製薬業界で使用の補助剤と共に使用され、そのため公知の方法により、例えば、乳剤液版、直接噴霧可能な、又は着色可能な液版、着色乳剤、水和剤、水溶剤、粉剤、粒剤および例えば、ポリマー物質中のカーバゼル化剤に加工される。噴霧、霧化、散布、浸漬、散水又は注水のような適用方法ならびに組成物の型は、所期目的および使用環境に適合するように選ばれる。

製剤、即ち式Iの有効成分および必要な場合には、固体またはそれ以上の固体又は液体の補助剤を含む組成物、

適用または調合物は、公知の方法により、例えば有効成分を溶液、固体粗体および適当な場合には表面活性化合物（界面活性剤）のような增量剤と十分に混合および/又は厚味することにより、製造される。

下記のものは液版として適当である：芳香族炭化水素等に從来原子数8ないし12の部分、例えばキシリソル化合物またはアルキル化ナフタレンのようなアルキルベンゼンの混合物；パラフィン、シクロヘキサンまたはテトラヒドロナフタレンのような脂肪族および環状式炭化水素；エタノール、プロパノールまたはブタノールのようなアルコール；ブロビレングリコールまたはブリシングリコールエーテルのようなグリコール並びにそれらのエーテルおよびエスチル；シクロヘキサノン、イソブロノンまたはジアセトシアルコールのようなケトン；N-メチル-2-ヒドロキシド、ジメチルスルホキシドのような強酸性溶媒または水；ナタネ油、ヒマシ油または大豆油のような植物油、並びにそれらのエスチル；シリコン油も適当である。

例えば粉剤および分散性粉末に使用する固体粗体は通常、方解石、タルク、カオリソ、モンモリロナイトまたはアバカルジャイトのような天然岩石粉末である。物性を改良するため、高分散ケイ酸または高分散吸収性ポリマーを添加することもできる。適当な粒剤、粒状化剤

は多孔性のもので、例えば、蛭石、硫酸レンガ、セビオライトまたはペントナイトであり、ならびに適当な非吸収性粗体は例えば方解石または砂である。さらには広範囲の既もって粒状化した無機質または有機質の物質、特にドロマイトまたは粉木化植物残骸が使用されうる。

製剤される式Iで表される有効成分の性質により、適する界面活性化合物は、良好な乳化、分散および水和性を有する非イオン性、陽イオン性および/又は陰イオン性界面活性剤である。界面活性剤の選択はまた界面活性剤の混合物も意味するものと理解すべきである。

いわゆる水溶性石ケンまたは水溶性合成界面活性成分は適当な陰イオン性界面活性剤である。

石ケンは高級脂肪酸（C₁₂～C₁₈）のアルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、または未置換または置換のアンモニウム塩、例えばオレイン酸またはステアリン酸、あるいは例えばココナツ油または歯垢から得られる天然脂肪酸混合物のナトリウムまたはカリウム塩である。脂肪酸メチルタウリン塩もさらにまた適す。

しかし、いわゆる合成界面活性剤は、特に脂肪アルコールスルホネート、脂肪アルコールスルフエート、スルホ化ベンズイミダゾール粗体またはアルキルアリー

ルスルホネートが、さらに頻繁に使用される。

脂肪アルコールスルホネートまたは脂肪アルコールスルフェートは一般に、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、または未置換または置換のアンモニウム塩の形態であり、アシル基のアルキル部分をも含む炭素原子数8ないし22のアルキル基を含み、例えば、リグノスルホン酸、ドデシル硫酸または天然脂肪酸から得られる脂肪アルコール硫酸またはカルシウム塩である。これらの化合物はまた、脂肪エステルの塩、および脂肪アルコール/エチレンオキシド付加物のスルホン酸の塩も含まれる。スルホン化ベンズイミダゾール誘導体は、好ましくは二つのスルホン酸基と8ないし22の炭素原子を含む一つの脂肪酸基とを含む。アルキルアリールスルホネートの例は、ドデシルベンゼンスルホン酸、ジブチルナフタレンスルホン酸またはナフタレンスルホン酸/ホルムアルdehyド縮合物のナトリウム、カルシウムまたはトリエタノールアミン塩である。

対応するホスフェート、例えば、エチレンオキシド4ないし14モルを持つフーノニルフェノールの付加物のリン酸エチルの塩があげられ、またはリン酸質もまたさらに適当である。

ポリオキシエチレンソルビタントリオレートのようなポリオキシエチレンソルビタンの脂肪酸エチルもさらに適当である。

カチオン性界面活性剤は、特にN-置換基として少なくとも一つの炭素原子数8ないし22のアルキル基と、他の置換基として未置換のまたは低級ハロゲン化アルキル基、ベンズル基または低級ヒドロキシアルキル基とを含む第四アシモニウム塩である。

塩はハイドロ、メチルスルフェートまたはエチルスルフェート、例えば、ステアリルトリメチルアンモニウムクロロドまたはベンジルジ(2-クロロエチル)エチルアンモニウムブロマイドの形態が好ましい。

製剤業界で慣用的に使用されている界面活性剤は特に、以下の刊行物に記載されている。

“マックチャーンズ データーフェンツ アンド エマルジファイアーズ アニュアル (Mc Cusheons's Detergents and Emulsifiers Annual)”。マック出版社、グレン ロック、ニュージャージー州、1988年；エム アンド ジェー、アッシュ、エンサイクロペディア オブ サーファクタント (Encyclopedia of Surfactants)” 1～3巻、ケミカル出版社、ニューヨーク、1980～1981年；ヘルムト スタッヒ (Dr. Helmut Stache)著、テ

ルイオン性界面活性剤は好ましくは主に、脂肪族または環状アルコール、または飽和または不飽和脂肪酸およびアルキルフェノールのポリエーテルエーテル誘導体であり、該誘導体は3ないし30個のグリコールエーテル基、および(脂肪族)炭化水素基に8ないし20個の炭素原子、そしてアルキルフェノールのアルキル部分に8ないし18個の炭素原子を含む。

他の非イオン性界面活性剤はポリブロビレングリコール、エチレンジアミノポリブロビレングリコールおよびアルキル基中に1ないし10個の炭素原子を含むアルキルポリブロビレングリコールとのポリエチレンオキシド

水溶性付加物であり、その付加物は20ないし250個のエチレンブリコールエーテル基、および10ないし100個のプロビレングリコールエーテル基を含む。上記の化合物は通常、プロビレングリコール単位当たり1ないし5のエチレンブリコール単位を含む。

非イオン性界面活性剤の代表例は、ノニルフェノール-ポリエチキシエタノール、ヒマツ油・ポリグリコールエーテル、ポリブロビレン/ポリエチレンオキシド・付加物、トリプチルフェノキシボリエチキシエタノール、ポリエチレンブリコールおよびオクタデルフェノキシボリエチキシエタノールである。

シンド-タッセンブーフ (Tensid-Taschenbuch)、カール ハンマー出版社、ミンヘン/ウイン (Carl Haasen-Verlag, Munich/Vienna), 1981年。

通常、製剤は式1の有効成分0、1ないし99%、特に0、1ないし15%、固体または液体補助剤1ないし99%、および界面活性剤0ないし25%、特に0、1ないし25%を含む。

使用者は一般に希釈した組成物を使用するが、市販の製品は原液として製剤化されるのが好ましい。

組成物は安定剤、例えば、エボキシ化されているか、またはエボキシ化されていない植物油(エボキシ化ココナッツ油、ナツメ油または大豆油)、消泡剤、例えば、シリコン油、防腐剤、粘度調整剤、結合剤、粘着性付与剤並びに特別の効果を出すための肥料のような他の補助剤、または他の有効物質を含むことでもできる。

好ましい製剤は、特に下記の組成を持つ：
(% = 重量分パーセント)。

乳剤原液：

有効成分 1ないし20%、好ましくは5ないし10%

表面活性剤 5ないし30%、好ましくは10ないし

固体担体材料 8.9%、しないし 7.0%、好ましくは 8.7%
ないし 8.5%

液体担体 2.0%
5ないし 7.4%、好ましくは 7.0ないし
8.5%

剤型：
有効成分 0.1ないし 1.0%、好ましくは 0.1
ないし 1%

固体担体 9.9、9ないし 9.0%、好ましくは 9.9%
9ないし 9.9%

堅固原液：
有効成分 5ないし 7.5%、好ましくは 1.0ないし
5.0%

水 8.4ないし 2.4%、好ましくは 8.8ないし
3.0%

表面活性剤 1ないし 4.0%、好ましくは 2ないし 3
0%

水和剤：
有効成分 0.5ないし 9.0%、好ましくは 1ないし
8.0%

表面活性剤 0.5ないし 2.0%、好ましくは 1ないし
1.5%

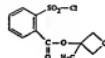
固体担体 5ないし 9.5%、好ましくは 1.5ないし
9.0%

強制：
有効成分 0.5ないし 3.0%、好ましくは 3ないし
1.5%

製造実施例

実施例 H 1：

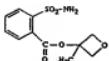
2-(3-メチルオキセタン-3-オキシカルボニル)
フェニルスルホニルクロラайд



3-メチル-3-ヒドロキシオキセタン 6.25 g、2-クロロスルホニルベンゾイルクロラайд 6.1 g および無水塩化メチレン 4.0 ml の混合物を、0-5°Cで、ピリジン 5.6 g (無水塩化メチレン 1.0 ml に溶解した)と共に処理する。次いで、反応混合物を 2.0ないし 2.5°C の温度で 2 時間にわたり攪拌し、次いで水水 1.0 ml 中へ注入する。有機相を分離し、そして Mg, SO₄ 上で乾燥し、酰化化合物の塩化メチレン溶液を更に操作することなしに実施例 H 2 で使用する。

実施例 H 2：

2-(3-メチルオキセタン-3-オキシカルボニル)
フェニルスルホニアミド



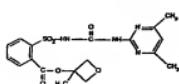
アンモニア L 5 g を実施例 H 1 で得られた塩化メチレン溶液中へ 0ないし 5°C で 1 時間にわたり滴落せしめる。混合物をろ過し、次いで水水で処理し、そして有機相を分離し、水で乾燥し、Mg, SO₄ 上で乾燥する。減圧下乾燥した後、酰化化合物の結晶 Z, 1 g を得る: m.p. 113-115°C。

g および無水ジメチルホルムアミド 4 ml を、2.0-2.5°C で漸下して、フアザビシクロ-[5,4,0]-7-ウンデセン 0.78 g とジメチルホルムアミド 1 ml の混合物と処理し、次いで 2.0ないし 2.5°C の温度で 4 時間にわたり攪拌する。混合物を水と 1.0% 塩酸中に移し pH 5 にした後、m.p. 116-118°C (分解) の酰化化合物が結晶析出する。

下記の表に示した式 I の化合物と、それらの中間体を同様にして製造する。

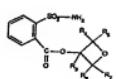
実施例 H 3：

N-[2-(3-メチルオキセタン-3-オキシカルボニル)フェニルスルホニル] - N'-(4, 6-ジメチル-1, 3-ビリミジニル)尿素



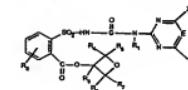
2-(3-メチルオキセタン-3-オキシカルボニル)
フェニルスルホニアミド 1.35 g、4, 6-ジメチル-
-1, 3-ビリミジニル・フェニルカーバメート 1.35

表 1: 下式の中間体



化合物 No.	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆	R ₇	M.p. [°C]
1.001	CH ₃	H	H	H	H	113-115
1.002	CH ₃	CH ₃	H	H	H	Oil
1.003	H	CH ₃	CH ₃	H	H	
1.004	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	
1.005	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	
1.006	CH ₃					

第2表: 式 I の化合物



化合物 No.	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆	R ₇	X	Y	Z
2.001	H	H	CH ₃	H	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH 196-198
2.002	H	H	CH ₃	H	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH 183-185
2.003	H	H	CH ₃	H	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH
2.004	H	H	CH ₃	H	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH
2.005	H	H	CH ₃	H	H	H	H	Cl	OC ₂ H ₅	CH
2.006	H	H	CH ₃	H	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	N 130-132
2.007	H	H	CH ₃	H	H	H	H	OC ₂ H ₅	△	N
2.008	H	H	CH ₃	H	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N
2.009	H	H	CH ₃	H	H	H	H	HNC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N
2.010	H	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH 120
2.011	H	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH 173-175
2.012	H	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH
2.013	H	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH
2.014	H	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH
2.015	H	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH
2.016	H	H	H	CH ₃	H	H	H	Cl	OC ₂ H ₅	CH
2.017	H	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	N 159-161
2.018	H	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	△	N
2.019	H	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N
2.020	H	H	H	CH ₃	H	H	H	HNC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N
2.021	H	H	H	CH ₃	H	H	H	N(C ₂ H ₅) ₂	OC ₂ H ₅	N
2.022	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH

化合物 No.	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆	R ₇	X	Y	Z
2.023	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH	
2.024	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OC ₂ H ₅	CH	
2.025	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OC ₂ H ₅	CH	
2.026	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OC ₂ H ₅	CH	
2.027	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OC ₂ H ₅	CH	
2.028	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OCH ₂	△	N
2.029	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N
2.030	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	HNC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N
2.031	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH	
2.032	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	
2.033	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	H	OC ₂ H ₅	CH	
2.034	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	H	OC ₂ H ₅	CH	
2.035	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	H	OC ₂ H ₅	CH	
2.036	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	H	OC ₂ H ₅	CH	
2.037	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	OCH ₂	△	N	
2.038	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N	
2.039	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	HNC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N	
2.040	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	CH	CH	
2.041	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.042	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.043	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.044	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.045	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.046	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.047	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.048	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	HNC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	
2.049	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	CH ₃	OC ₂ H ₅	
2.050	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	CH ₃	OC ₂ H ₅	
2.051	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	CH ₃	OC ₂ H ₅	
2.052	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	CH ₃	OC ₂ H ₅	
2.053	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	CH ₃	CH ₃	OC ₂ H ₅	

式 I の有効成分の組成例

(N = 蔡量 %)

F.1. 水和解

	a)	b)	c)
表 2 の有効成分	20%	50%	0.5%
リグノスルホン酸ナトリウム	5%	5%	5%
ラウリル硫酸ナトリウム	3%	—	—
ジヒドロチタノラクトン	—	6%	6%
ジヒドロチタノラクトン	—	2%	2%
(エチルエキシド 7-8%)	—	—	—
高分子ケイ酸	5%	27%	27%
カオリין	67%	—	—
食塩	—	—	50.5%

有効成分は新規剤と十分に混合し、混合物を適量なミル中で充分に粉碎する。所定の濃度の界面活性剤を用いるために、

水で希釈できる水和剤を得る。

F 2. 水分散性剤剤

	a)	b)
表 2 の有効成分	75%	5%
リグノスルホン酸ナトリウム	2%	0.5%
アラビアガム	1%	1%
硫酸ナトリウム	5%	3%
リグノスルホン酸ナトリウム	17%	15%
カオリン	-	75.5%

水との希釈により上記のような異厚物から、所望の濃度の乳剤が得られる。

F 3. 粉剤

	a)	b)
表 2 の有効成分	0.1%	1%
タルク	99.9%	-
カオリン	-	99%
粗体と有効成分を均質に混合することにより、すぐに使用できる粉剤が得られる。		
<u>F 4. 壓し出し式剤</u>	a)	b)
表 2 の有効成分	10%	1%
リグノスルホン酸ナトリウム	2%	2%

希釈することによってあらゆる所望の濃度の懸濁液が作れる懸濁原液が得られる。

F 7. 混液剤

表 2 の有効成分	5%
イソプロピルアミン	1%
リグノスルホン酸ナトリウム	3%
(リソリキシ F 78#)	
水	91%

生物学的実験剤

実施例 B 1 : 植物の発芽前の除草作用

プラスチックの盆を、膨張させたパニキュライト（密度：0.135 g/cm³、水吸着容量：0.565 g/g）で満たす。非耕性パニキュライトを7.0 ppmの濃度で有効成分を含む、脱イオン水中の水性有効成分エマルジョンで処理した後、以下の種子の種をその表面に播く：おもながらし（*Nasturtium officinale*）、アカボまたはコタカガサの一種（*Agrostis tenuis*）、ハコベ（*Stellaria media*）およびシバの一種（*Digitaria sanguinalis*）。

試験容器を引続ぎ、20°C、約20 k lux の照度および70%の相対大気湿度で制御された気温調節室に保持する。4ないし5日の発芽前に、株は局所的な大気湿度を増すため、透明な材料で覆われ、そして脱イオン水

カルボキシメチルセルロース	1%	1%
カオリン	87%	98%
有効成分を添加剤と混合し、そして混合物を希釈しいで水で混ぜさせる。混合物を押し出し次いで押出物を空気流で乾燥する。		

F 5. 被覆剤

表 2 の有効成分	3%
ポリエレンクリコール（分子量200）	3%
カオリン	94%

ミキサー中で、ポリエレンクリコールで混ぜられたカオリンを、細粉された有効成分と均一に被覆する。この方法で、非粉塵性の被覆剤剤が得られる。

F 6. 結晶原液

	a)	b)
表 2 の有効成分	5%	40%
エチレンクリコール	10%	10%
リグノスルホン酸ナトリウム	1%	6%
(リソリキシ F 15#)		
リグノスルホン酸ナトリウム	5%	10%
カルボキシメチルセルロース	1%	1%
3.7% 水性ホルムアルデヒド溶液	0.2%	0.2%
75% 水性乳剤形態のシリコン油	0.8%	0.8%
水	77%	32%
細粉された有効成分を添加剤と均一に混合する。水と希		

で灌水する。5日後、0、5%の市販の液体肥料を灌漑水に加える。播種12日後、試験は評価され、試験植物の作用を以下の尺度を使って評価する。

1：植物が発芽しないか、または完全に枯れる

2-3：著しい高育作用

4-6：中位の作用

7-8：弱い作用

9：作用なし（未処理の対照と同様）

この試験で、式1の化合物は強力な除草作用を示す。

表 B 1 : 発芽前の作用

有効成分の濃度：7.0 ppm

有効成分 No.	試験 植物			
	ニンジン	セリ	アサガホ	レタス
2.001	1	2	1	2
2.002	3	3	1	2
2.006	1	2	2	1
2.010	2	2	2	2
2.011	2	2	1	2
2.017	2	2	2	2

実施例 B 2 : 発芽後の除草作用（接触除草剤）

発芽後（4ないし6葉期後段）、多数の雑草について單子葉および双子葉の両方にヘクタールあたり試験化合

特表平7-504173 (16)

物 8 - 500 g の投与量で有効成分の実施例 F 6 に従った水性分散液を噴霧し、被物を 24 - 26 °C および相対大気湿度 45 - 60 % で保つ。試験を施設後 15 日間にわたって評価する。

3 週間後、除草作用を 9 段階評価 (1 = 完全に枯らす、9 = 作用無し) を使用して、未処理の对照群と比較して評価する。6ないし 9 の指数 (特に 7 ないし 9) は良好な耐性 (特に作物植物の場合) を示す。

この試験で、式 I の化合物は強力な除草作用を示す。同様な結果は、式 I の化合物を F 1 ないし F 5 および F 7 に従って要則した場合にも得られる。

実施例 B 3 : 試験中の除草剤 No. 2, 0 1 1 のおよび式 S 1 と S 2 の高害除草剤との除草剤の混合物の発芽抑制の植物害の影響

コムギを、プラスチック製鉢中、温室の条件下で 3 週期まで生育する。この段階で、式 I の除草剤を純粋な有効成分として並びに高害除草剤との除草剤の混合物として、試験植物に適用する。適用は水 5 000 1 / ha (ヘクタール) を使用して試験物質の水性けん液の形で実施する。除草剤の適用量は 3 0 / 1 5 / 8 g / ha であり、高害除草剤の適用量は 6 0 g / ha である。適用後 28 日で、試験をバーセンテージ係数を使用して評価する。100 % は試験植物が枯死したことを意味し、0 % は植物害の無かったことを意味する。結果は、使用さ

れた高害除草剤が、コムギにおける除草剤による害を顯著に減らす能力のあることを示している。高害除草剤の優れた防護作用の例を表 B 3 に示す。

表 B 3 :

除草剤 化合物 No.	高害除草剤 No. g/ha	除草剤の適用量 (g/ha)		
		3 0	1 5	8
2,011	-		8 0	7 0
2,011	S 1 6 0	6 0	2 0	1 5
2,011	S 2 6 0	6 0	2 5	1 0

実施例 B 4 : トウモロコシ中の除草剤 No. 2, 0 1 1 のおよび式 S 3 の高害除草剤との除草剤の混合物の発芽抑制の植物害の影響

トウモロコシを、プラスチック製鉢中、温室の条件下で 2.5 週期まで生育する。この段階で、式 I の除草剤を純粋な有効成分として並びに高害除草剤との除草剤の混合物として、試験植物に適用する。適用は水 5 000 1 / ha (ヘクタール) を使用して試験物質の水性けん液の形で実施する。除草剤の適用量は 3 0 / 1 5 / 8 g / ha であり、高害除草剤の適用量は 6 0 g / ha である。

適用後 12 日で、試験をバーセンテージ係数を使用して評価する。100 % は試験植物が枯死したことを意味し、0 % は植物害の無かったことを意味する。結果は、使用された高害除草剤が、トウモロコシにおける除草剤による害を顯著に減らす能力のあることを示している。

高害除草剤の優れた防護作用の例を表 B 4 に示す。

表 B 4 :

除草剤 化合物 No.	高害除草剤 No. g/ha	除草剤の適用量 (g/ha)		
		3 0	1 5	8
2,011	-	9 0	8 0	7 5
2,011	S 3 6 0	6 5	5 0	3 0

実施例 B 5 : トウモロコシ種子で種子被覆のために、式 S 4 の高害除草剤との除草剤 No. 2, 0 1 1 の混合物を使用

トウモロコシ種子を 1 g / (種子 1 kg) の量と同等の量で式 S 4 の高害除草剤で被覆する。次いで、トウモロコシを、プラスチック製鉢中、温室の条件下で 2.5 週期まで生育する。未処理のトウモロコシと同じ期まで処理したトウモロコシと平行して生育する。この段階で、式 I の除草剤を処理したそして未処理の試験植物に適用する。適用を、除草剤の水性けん液の形で水 5 000 1 / ha で実施する。除草剤の適用量は 3 0 または 1 5 g / ha でありそして式 S 4 の種子被覆高害除草剤の適用量は 1 g / (種子 1 kg) である。適用 14 日後に、試験をバーセンテージ係数を使用して評価する。100 % は試験植物が枯死したことを意味し、0 % は植物害の無かったことを意味する。結果は、種子被覆剤として使用された高害除草剤が、除草剤の発芽抑制による害を顯著に減らすことを示している。同様な結果は、除草剤

が発芽抑制に適用された場合も得られる。高害除草剤の優れた防護作用の例を表 B 5 に示す。

表 B 5 :

除草剤 化合物 No.	高害除草剤 No. g/ha	除草剤の適用量 (g/ha)		
		3 0	1 5	8
2,011	-		8 0	8 0
2,011	S 4 6 0	2 0	1 0	0 5

This annex lists the names, family members, ranking in the patient documents cited in the above-mentioned International search report. The numbers are not mentioned in the European Patent Office EPO file no. The European Patent Office is not in any way liable for these references which are merely given for the purpose of information. 3.3.2014 10:23

Primer description (to be stored intact)	Publication date	Primer family (to be stored intact)	Production date
EP-A-0498761	21-07-92	CA-*	1063490
		JP-*	1063493
		EP-*	0484883
			02-12-92
EP-A-0507657	06-02-96	AT-*	5328575
		AB-*	5328576
		CA-*	1298575
		JP-*	1298576
		EP-*, B	0046626
		JP-*	0046626
		US-*	20-01-90
		US-*	0483113
		US-*	10-05-93
		US-*	0483114
		US-*	0483115
		US-*	18-04-97
		US-*	4687507
		US-*	18-04-97
		US-*	4687508
		US-*	03-01-98
		US-*	4687509
		US-*	14-01-98
		US-*	4687510
		US-*	25-01-98
		US-*	4618278
		US-*	04-04-93
		US-*	4776154
		US-*	0477615
		US-*	4467363
			03-01-97
US-A-4892946	09-01-90	US-*	4294560
		US-*	4304560
		AT-*	7840
		AB-*	1344905
		CA-*	1212195
		JP-*	1182055
		EP-*	5659008
		JP-*	5659008
		US-*	4363113
		US-*	0422502
		US-*	4545803
		US-*	4545804
		US-*	4545805
		US-*	4545806
		US-*	045458072
		EP-*	0034431
			26-08-91

卷之三

フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, SN, TD, TG), AU, BB, BG, BR, CA, CZ, FI, HU, JP, KP, KR, LK, MG, MN, MW, NO, NZ, PL, RO, RU, SD, SK, UA, US